

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005年9月1日 (01.09.2005)

PCT

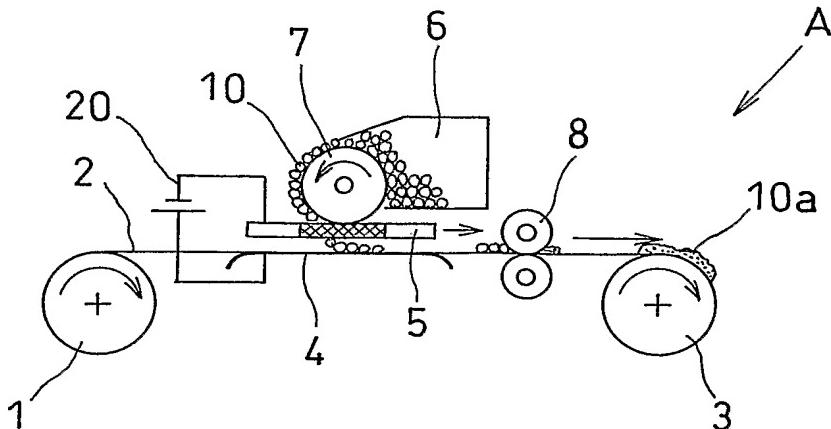
(10) 国際公開番号
WO 2005/080008 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B05D 1/04, B05C 19/00, B05D 1/28 // H01M 4/88, 8/02, 8/10
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/003079
- (22) 国際出願日: 2005年2月18日 (18.02.2005)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2004-042957 2004年2月19日 (19.02.2004) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): トヨタ自動車株式会社 (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒4718571 愛知県豊田市トヨタ町1番地 Aichi (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 角谷聰 (KADOTANI, Satoshi) [JP/JP]; 〒4718571 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内 Aichi (JP). 川原竜也 (KAWAHARA, Tatsuya) [JP/JP]; 〒4718571 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内 Aichi (JP). 村手政志 (MURATE, Masashi) [JP/JP]; 〒4718571 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内 Aichi (JP). 加治敬史 (KAJI, Yoshifumi) [JP/JP]; 〒4442149 愛知県岡崎市細川町字徳林69-24 Aichi (JP).
- (74) 代理人: 平木祐輔, 外 (HIRAKI, Yusuke et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門4丁目3番20号 神谷町MTビル19階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,

/続葉有

(54) Title: METHOD AND APPARATUS FOR FORMING CATALYST LAYER ON BASE CONSTITUTING MEMBRANE ELECTRODE ASSEMBLY

(54) 発明の名称: 膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する方法と装置



WO 2005/080008 A1

(57) Abstract: An apparatus (A) for forming a catalyst layer by electrodepositing an electrode power (10) on electrolyte film serving as a base (2). A screen (5) is held out of contact with the base (2), and a voltage is applied between them. The electrode power (10) is made to adhere to an elastic feed roller (7), and the feed roller (7) is rotated in press contact with the screen (5). The electrode powder (10) flies to the base (2) because of the electrostatic force and the extruding force of the elastic body and adheres stably. While using a mesh-like screen conventionally used, the variation of the thickness of the catalyst layer transferred and formed to and on the base (electrolyte film) by the electrostatic force and the disorder of the outline can be extremely lessened, thereby producing a membrane electrode assembly with a high product manufacturing accuracy.

(57) 要約: 基材2としての電解質膜に電極粉体10を静電付着させて触媒層を形成する装置Aにおいて、基材2に対して非接触状態にスクリーン5を保持しておき、その間に電圧を印加する。弾性を有するフィードローラ7に電極粉体10を付着させて、スクリーン5上に圧接しながら回動する。電極粉体10は基材2に向けて静電気力と弾性体の押し出し力の双方により飛翔して安定的に付着する。従来使用されているメッシュ状のスクリーンを用いながら、静電気力により基材(電解質膜)側に転写形成される触媒層の厚みムラや輪郭の崩れをきわめて少なくして、製品加工精度の高い膜電極接合体が得られる。



BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE,

BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明細書

膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する方法と装置

5 技術分野

本発明は燃料電池、特に、固体高分子型燃料電池に用いられる膜電極接合体における基材（電解質膜またはガス拡散層）に触媒層を形成する方法とその装置に関する。

10 背景技術

固体高分子型燃料電池は、イオン交換膜からなる電解質膜とこの両面に配置される触媒層およびガス拡散層からなる膜電極接合体（MEA:Membrane-Electrode Assembly）と、膜電極接合体に積層されるセパレータなどを備える。触媒層は最初に電解質膜側に形成される場合もあり、最初にガス拡散層側に形成される
15 場合もある。前者の場合には、基材である電解質膜に形成した触媒層に対してガス拡散層を加熱加圧して積層することにより膜電極接合体とされ、後者の場合には、電解質膜の両面に触媒層が面するようにしてガス拡散層を積層することにより膜電極接合体とされる。

触媒層は白金担持カーボンのような電極粉体（触媒担持導電体）を含み、上記
20 のように電極粉体を基材である電解質膜あるいはガス拡散層に配置して触媒層を形成する方法としては、電極インクを、スクリーン印刷、ブレード法、ローラコート法、スプレー法などにより基材に塗布する、いわゆる湿式塗布方法が従来から行われてきた。近年になり、静電気力や気体（キャリヤーガス）の流れを利用して、電極粉体を基材である電解質膜またはガス拡散層に向けて飛翔させて直接
25 付着させる乾式方法も採用されつつある。

静電気力を利用した乾式方法により連続的に膜電極接合体を製造する方法が特開2003-163011号公報に記載されている。ここでは、電極粉体を所定パターンでドラム上に塗布し帯電させ、それを連続供給される電解質膜に静電気力をを利用して転写し、次いで加熱加圧して定着するようしている。特開200

2-367616号公報には、電極粉体である白金担持カーボンを帯電させて、転写パターンをコントロールする制御ブレードを介してパターニングしながらローラ上に堆積させ、その後電解質膜に転写、定着して膜電極接合体とする技術が記載されている。

5 本発明者らは上記したように乾式法による膜電極接合体の製造を多く経験しているが、その過程で、転写パターンが複雑な形状となったような場合に、基材である電解質膜あるいはガス拡散層に転写された電極粉体で形成される触媒層の厚みにムラが生じたり、パターンの輪郭が不明瞭となったりして、製品加工精度が低下する場合があることを経験した。印加電圧を高くすることによりその不都合をある程度は解消することができるが、絶縁破壊が生じるために電界を3kV/mm以上にすることはできない。また、電極粉体に大電流が流れて発火する恐れもある。

特開2002-367616号公報に記載の方法では、制御ブレードに形成した穴を囲むようにして多数のリング状電極を配置し、-電位をかけた穴からは電極粉体が出ないようにし、+電位をかけた穴からのみ飛翔するような構成として、電解質膜への粉体付着部位を特定するようにしております、ほぼ均一な触媒層が形成されると期待できる。しかし、このような複雑な構成を持つ制御ブレードを形成することは可能ではあるとしても、装置のコストが高くなりメンテナンスも煩雑となるために現実的ではない。

20 本発明は、上記のような事情に鑑みてなされたものであり、従来使用されているメッシュ状のスクリーンを用いながら、静電気力により基材側に転写される触媒層の厚みムラや輪郭の崩れをきわめて少なくして、製品加工精度の高い膜電極接合体を得ることのできる、新規な触媒層の形成方法と装置を提供することを目的とする。

25

発明の開示

上記課題を解決すべく、本発明者らは静電気力を利用した乾式法による膜電極接合体の製造方法について多くの実験を行うことにより、本質的に静電気力のみによる電極粉体の飛翔では、電極粉体が付着したローラから基材（電解質膜ある

いはガス拡散層、以下、本発明では双方を含めて「基材」という)へ移動するときの帶電量が十分でなく、そのために、上記のような厚みムラや輪郭の崩れのような不具合が生じることを知った。そこで、スクリーン上で帶電した電極粉体に弾性体を用いて基材に向けた押し出し力を附加したところ、転写パターンの厚み
5 はそのすべてにおいて高い均一性を示し、また、輪郭の崩れも生じなかった。

本発明は、本発明者らが得た上記の知見に基づくものであり、基本的に、膜電極接合体を構成する基材に電極粉体を静電付着させて触媒層を形成する方法であって、基材に対して非接触状態にスクリーンを配置し、基材とスクリーン間に電圧を印加しておき、スクリーン上に供給されることにより帶電した電極粉体を弾性体で押し付けることによって、静電気力と弾性体の押し出し力の双方により、電極粉体を基材側に飛翔させて付着させる行程を少なくとも含むことを特徴とする。このようにして所望形状に乾式塗布された電極粉体を基材に熱圧定着することにより、所望のパターンの触媒層を持つ基材が得られる。

本発明の方法によれば、静電気力と押し出し力の双方によって、スクリーンから基材への電極粉体の飛翔が行われるので、低い印加電圧でもって所望の塗布パターンを得ることができる。基材とスクリーン間の電圧は0～10kV程度、距離は1～20mm程度が好ましく、より好ましくは、空気の絶縁破壊電界である3kV/mmを越えないことを条件に、基材とスクリーン間の電圧を1～5kV、距離1～10mmの間で適宜設定する。

後の実施例に示すように、本発明の方法を採用することにより、塗布層の厚みムラを実質的になくすことができ、また、基材とスクリーン間の距離を狭くすることにより、輪郭が鮮明となる。さらに、電極粉体の歩留まりも向上する。また、スクリーンには、従来使用されてきたメッシュ状のスクリーンをそのまま利用できる利点もある。

より具体的な態様では、前記弾性体として弾性材料で作られたフィードローラを用い、電極粉体を基材側に飛翔させて付着させる工程を、電極粉体をフィードローラに供給する行程と、電極粉体を付着したフィードローラをスクリーンに押し付けながら転動させる行程とで行うようとする。この態様では、フィードローラをスクリーン上で転動するだけで所望の塗布を終えることができ、製造工程は

簡素化する。また、電極粉体がフィードローラに確実に付着するように、コロナ放電や摩擦などで電極粉体を帯電させることも、好ましい態様である。

本発明は、上記の製造方法を好適に実施することのできる基材へ触媒層を形成するための装置をも開示する。本発明による装置は、膜電極接合体を構成する基材へ電極粉体を静電付着させて触媒層を形成する装置であって、基材に対して非接触状態にスクリーンを保持する手段、基材とスクリーン間に電圧を印加する手段と、スクリーン上に電極粉体を供給する手段と、スクリーン上に供給された電極粉体を基材に向けて押し付ける手段、とを少なくとも備え、静電気力と弾性体の押し出し力の双方により、電極粉体を基材側に飛翔させて付着させることを特徴とする。

上記の装置において、好ましくは、電極粉体を収容したホッパーと、ホッパーの出口側に取り付けたフィードローラとを備えるようにし、フィードローラはスクリーンに圧接した状態で転動できるようになっていて、該フィードローラが、スクリーン上に電極粉体を供給する手段とスクリーン上に供給された電極粉体を基材に向けて押し付ける手段とを構成するようにされる。ホッパーに収容した電極粉体とフィードローラとは、常時接触する状態に置かれてもよく、非接触状態に置かれっていて、ホッパーに収容した電極粉体がフィードローラ上に落下するような配置とされていてもよい。ホッパー内に収容した電極粉体を、コロナ放電や摩擦などで帶電させる手段を備えることは好ましく、フィードローラへの電極粉体の付着をより確実にすることができます。なお、電極粉体をフィードローラ上に落下させる態様の場合には、帶電により落下中に粉体同士が凝集することで塗布ムラが発生することが起こり得るので、必ずしも電極粉体を帶電させる必要はない。

本発明において、基材としての電解質膜あるいはガス拡散層は、従来の固体高分子型燃料電池で用いられる膜電極接合体を製造するときに使用される任意のイオン交換膜からなる電解質膜あるいはガス拡散層を用いることができ、また、そこに塗布する電極粉体は、白金担持カーボンのように触媒担持導電体を適宜用いることができる。また、弾性体、特にフィードローラを構成する弾性体としては、ポリエチレン、ポリウレタンまたはそれぞれに対して発泡剤を添加したもの、

さらにゴムに発泡剤を添加したものなどを用いることができる。

本発明によれば、膜電極接合体を構成する基材に対して触媒層を形成するに当たって、低い印加電圧でもって、厚みムラのないかつ輪郭のはつきりした所要パターンの触媒層を塗布形成することができる。そのために、製品加工精度が向上するばかりでなく、製造の安全性も向上し、電極粉体の歩留まりも向上する。

図面の簡単な説明

図1は、本発明による膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する方法を好適に実施することのできる装置の一実施の形成を示す概略図であり、図2は、本発明による装置の他の実施の形態を示す概略図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を、図面を参照しながら、基材としての電解質膜に触媒層を形成する場合の実施の形態について説明するが、ガス拡散層に触媒層を形成する場合は、基材として電解質膜に代えてガス拡散層を用いることによりも実質的に同様にして行うことができる。図1は、本発明の製造方法を好適に実施することのできる装置の一実施の形成を示す概略図であり、図2は装置の他の実施の形態を示す概略図である。

装置Aは、ロール状に巻かれた基材（電解質膜）2を保持する巻き出しロール1と、電極粉体10が付着されかつ定着された後の基材2を巻き取る巻き取りロール3を備える。図示しない駆動手段により巻き出しロール1と巻き取りロール3は同期した回転をし、基材2は一定の速度で巻き取りロール3に巻き取られる。

巻き出しロール1と巻き取りロール3との間には、移動する基材2を背面から支持するバックアップ材4が位置しており、前記バックアップ材4から所定距離（例えば、10mm程度）離れた位置には、バックアップ材4と平行する姿勢で、メッシュ状のスクリーン5が適宜の保持手段により保持されている。そして、図示しない駆動手段によりスクリーン5はその下を移動する基材2と同期した速度で所定距離だけ基材2と同方向に移動し、その後、原位置に復帰するようにな

5 っている。スクリーン5には、基材2の上に電極粉体10を塗布（付着）しようとするパターン（すなわち、膜電極接合体での触媒層のパターン）と同じパターンの模様が例えば200メッシュのような編み目体で形成されている。スクリーン5にはSUSなどの導電性材料またはナイロンなど樹脂の絶縁材料のいずれかが用いられる。基材2の移動路であって、スクリーン5よりも下流側には、加熱ロールのような加熱圧着手段8が備えてあり、基材2に塗布された電極粉体10の定着を行う。

10 スクリーン5の上にはホッパー6が位置しており、該ホッパー6には電極粉体10が充填される。また、ホッパー6の出口部分には弾性体で作られたフィードローラ7が、その回転軸心を基材2の移動方向に直交する姿勢で配置されている。この例において、フィードローラ7の素材はポリエチレンであるが、ポリウレタンやゴムに発泡剤を添加したもので作ることもできる。また、フィードローラ7は図示しない駆動手段により回動するようになっている。

15 スクリーン5とフィードローラ7とは、スクリーン5の表面にフィードローラ7が圧接する状態、すなわち、フィードローラ7がスクリーン5の表面に押し付けられることにより、スクリーン5の接する面は潰されるように変形して、メッシュ内に部分的に入り込んだ状態を取り得るようにされている。

20 さらに、装置Aは電圧印加手段20を備え、スクリーン5に0～10kV程度の電圧をかけて、基材2とスクリーン5間に電界が印加されるようになっている。また、図示しないが、ホッパー6に収容した電極粉体10に帯電させる手段として、コロナ放電手段や攪拌による摩擦帶電手段などが、必要に応じて配置される。

25 なお、図示される装置Aでは、ホッパー6とフィードローラ7とは近接した位置に置かれ、ホッパー6内の電極材料10は當時フィードローラ7に接触した状態とされているが、ホッパー6とフィードローラ7とを離して配置し、ホッパー6から落下してくる電極材料10をフィードローラ7で受け止めるような態様であってもよい。ただし、その場合に、電極粉体10を帯電させると、落下中に粉体同士が凝集することで塗布ムラが生じることが起こり得るので、帯電させない方が好ましい場合も起こり得る。

基材 2 である電解質膜に触媒層を形成するに際し、スクリーン 5 に電圧印加手段 20 により所要に電圧をかけておく。ホッパー 6 に電極粉体 10 を充填し、必要に応じて帯電させる。巻き込みロール 3 を駆動して基材 2 を一定速度、例えば 5 m／分で矢印方向に移送する。それに同期して所望にパターンニングされたスクリーン 5 も同じ方向に移動させ、かつ、フィードローラ 7 にも回転を与える。

ホッパー 6 内の電極粉体 10 はフィードローラ 7 の表面に付着した状態でホッパー 6 から繰り出され、フィードローラ 7 がスクリーン 5 の表面に圧着すると同時に、電極粉体 10 はスクリーン 5 上に供給されかつ帯電した状態となる。さらにフィードローラ 7 が回転することにより、フィードローラ 7 の表面の一部はメッシュ状とされたスクリーン 5 内に入り込むようになるので、電極粉体 10 は弾性体であるフィードローラ 7 の表面で押し付けられるようになり、印可された電圧による静電気力に加えて、基材 2 側への押し出し力を受ける。

フィードローラ 7 の回転中にホッパー 6 からスクリーン 5 上に電極粉体 10 が落下することもあるが、その場合にも、落下した電極粉体 10 はスクリーン 5 の移動によりフィードローラ 7 の下に来たときにフィードローラ 7 により押し付けられ、やはり、印可された電圧による静電気力に加えて、基材 2 側への押し出し力を受ける。

この静電気力と弾性体の押し出し力の双方により、電極粉体 10 は基材 2 側に飛翔し付着する。付着した電極粉体 10 は、加熱圧着手段 8 を通過するときに基材 2 に定着されて安定し、触媒層 10a を形成する。その状態で基材 2 は巻き取りローラ 3 に巻き取られる。膜電極接合体の一枚分に対して電極粉体 10 の塗布（付着）が終了した時点で、スクリーン 5 は原位置に復帰し、次の塗布に備える。なお、図示の例では、一枚のスクリーン 5 を往復動させるようにしているが、複数枚のスクリーンを用いてスクリーンをローテーションさせるようにしてもよい。この態様は連続生産に好適である。

上記のように、本発明によれば、電極粉体 10 の基材（電解質膜）2 への飛翔と付着は、静電気力と押し出し力の双方で行われるので、十分に安全な低い電圧であっても、安定した飛翔と定着を実現することができる。そのために、形成される膜厚は一定なものとなり、輪郭もはつきりしたものとなって、製品加工精度

は向上する。さらに、強い力で基材に向けて飛翔するので、無駄に飛散する電極粉体量を少なくすることができ、それらのことから、電極粉体 10 の歩留まりも向上する。

上記の装置 A では基材 2 の一面にのみ電極粉体 10 を塗布して触媒層を形成するようにしたが、図 2 に示す装置は、基材 2 である電解質膜の両面に連続して電極粉体 10 を塗布することを可能としている。ここでは、図 1 に示す装置 A での巻き取りロール 3 に代えて送りロール 3a を使用し、そこを通過する一面に電極粉体 10 を触媒層 10a として定着した基材 2 を、さらに送りロール 3b を通過させることにより反転させ、該反転した基材 2 の触媒層 10a が形成されていない反対側の面に対して、図 1 に示した装置 A と同じ装置 Aa を用いて、電極粉体 10 を塗布し定着して触媒層 10b とするようにしている。両面に所定のパターンで電極粉体 10 が触媒層 10a, 10b として定着した基材 2 は、装置 Aa の巻き取りロール 3 により巻き取られる。

15 実施例

以下、実施例と比較例により本発明を説明する。

[実施例]

図 1 に示した装置を用いて塗布を行った。電極粉体は、50 wt % Pt/C : 電解質樹脂 = 2 : 1 としてものを用いた。塗布の目標値は、0.5 mg Pt/cm²とした。装置条件としては、スクリーン-基材間の印加電圧 : 3 kV、スクリーン-基材間の距離 : 10 mm、スクリーンメッシュ : 200 メッシュ、基材送り速度 : 5 m/min、とした。スクリーンは素材がステンレスのものを用い、スクリーンに対してフィードローラは全圧で 100 g 重～1 kg 重で圧接させた。

[比較例]

フィードローラとして、弾性体ではなく硬質体からなるフィードローラを用いて、実施例 1 と同様にして塗布テストを行った。

[比較]

実施例と比較例で得た電解質膜に形成された触媒層について、目標塗布量に対する実際の塗布量の変化量と塗布ムラを測定した。その結果を表 1 に示す。また

、硬質体のフィードローラの場合、電極粉体を押し出す力がなくなるために、目標塗布量まで塗布量を確保するためにフィードローラの回転数を早くして、粉体供給量を多くする必要があるために、材料歩留まりが実施例 1 と比較して低下した。さらに、スクリーンメッシュに粉体が滞留し、目詰まりが発生した。

5 表 1

	実施例	比較例
塗布量（対目標値）	± 10 %以下	± 20 %
塗布（厚み）ムラ	なし	厚薄の変化が顕著

表 1 に示すように、実施例品は均一な塗布膜が得られており、本発明の優位性が示される。

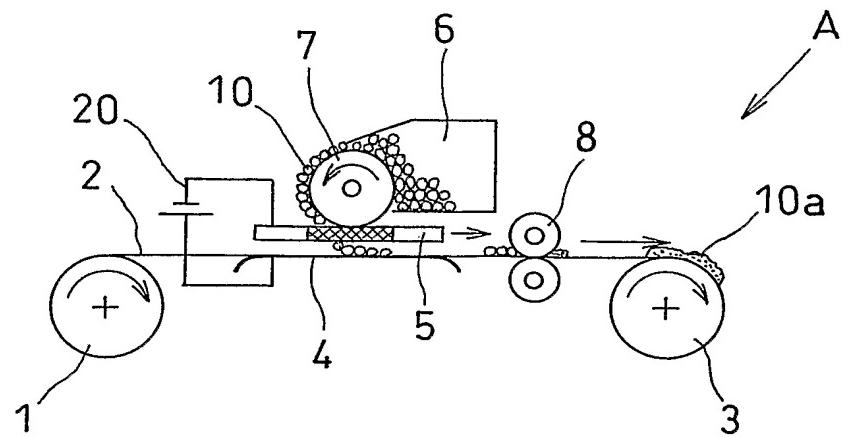
請求の範囲

1. 膜電極接合体を構成する基材に電極粉体を静電付着させて触媒層を形成する方法であって、基材に対して非接触状態にスクリーンを配置し、基材とスクリーン間に電圧を印加しておき、スクリーン上に供給されることにより帯電した電極粉体を弾性体で押し付けることによって、静電気力と弾性体の押し出し力の双方により、電極粉体を基材側に飛翔させて付着させる行程を少なくとも含むことを特徴とする膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する方法。
2. 弹性体として弹性材料で作られたフィードローラを用い、電極粉体を基材側に飛翔させて付着させる工程は、電極粉体をフィードローラに供給する行程と、電極粉体を付着したフィードローラをスクリーンに押し付けながら転動させる行程を含むことを特徴とする請求項1に記載の膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する方法。
3. 電極粉体をフィードローラに付着させる行程は電極粉体を帶電する行程を含むことを特徴とする請求項2に記載の膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する方法。
4. 基材が電解質膜またはガス拡散層である請求項1～3のいずれかに記載の膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する方法。
5. 膜電極接合体を構成する基材へ電極粉体を静電付着させて触媒層を形成する装置であって、基材に対して非接触状態にスクリーンを保持する手段、基材とスクリーン間に電圧を印加する手段と、スクリーン上に電極粉体を供給する手段と、スクリーン上に供給された電極粉体を基材に向けて押し付ける手段、とを少なくとも備え、静電気力と弾性体の押し出し力の双方により、電極粉体を基材側に飛翔させて付着させることを特徴とする膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する装置。
6. 電極粉体を収容したホッパーと、ホッパーの出口側に取り付けたフィードローラとを備え、フィードローラはスクリーンに圧接した状態で転動できるようになっており、該フィードローラが、スクリーン上に電極粉体を供給する手段とス

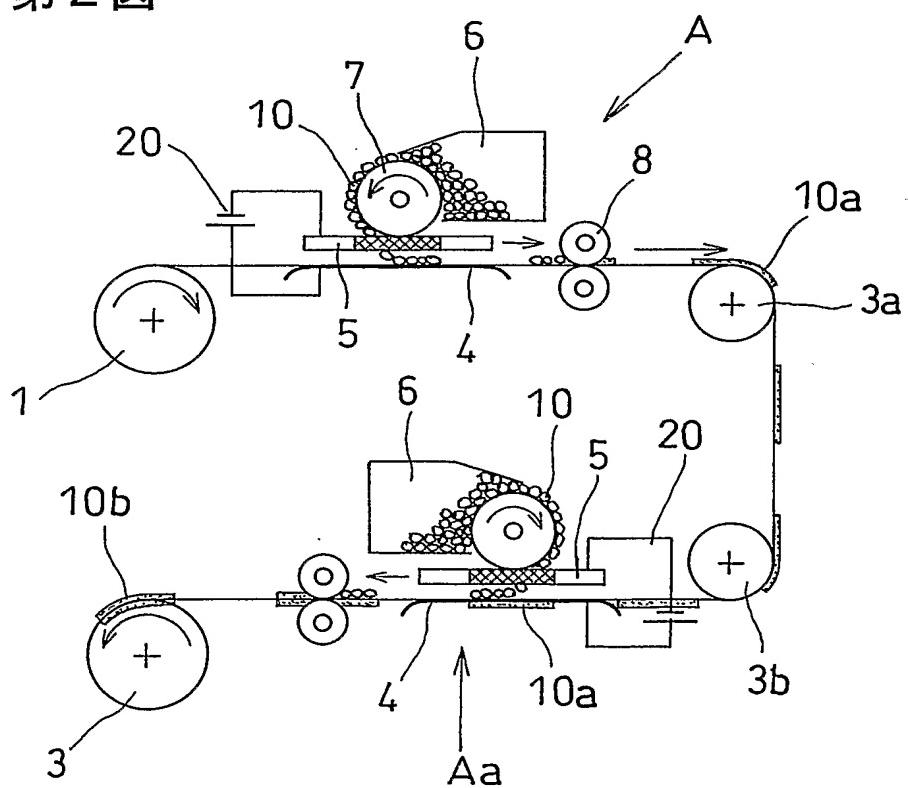
クリーン上に供給された電極粉体を基材に向けて押し付ける手段とを構成することを特徴とする請求項 5 に記載の膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する装置。

7. ホッパー内に収容した電極粉体を帶電させる手段をさらに備えることを特徴とする請求項 6 に記載の膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する装置。
- 5 8. 基材が電解質膜またはガス拡散層である請求項 5 ~ 7 のいずれかに記載の膜電極接合体を構成する基材へ触媒層を形成する装置。

第1図



第2図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/003079

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B05D1/04, B05C19/00, B05D1/28//H01M4/88, 8/02, 8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B05D1/04, B05C19/00, B05D1/28//H01M4/88, 8/02, 8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPIL

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-367616 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 20 December, 2002 (20.12.02), Full text; Figs. 1 to 10 (Family: none)	1-8
A	JP 2003-163011 A (Toyota Motor Corp.), 06 June, 2003 (06.06.03), Full text; Figs. 1 to 24 & US 2003-54225 A1	1-8
A	JP 11-126602 A (Nippeii Toyama Corp.), 11 May, 1999 (11.05.99), Full text; Figs. 1 to 14 (Family: none)	1-8

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 May, 2005 (09.05.05)

Date of mailing of the international search report
24 May, 2005 (24.05.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/003079

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 56-17664 A (Daiken Trade & Industry Co., Ltd.), 19 February, 1981 (19.02.81), Full text; all drawings (Family: none)	1-8
E, A	JP 2004-281221 A (Toyota Motor Corp.), 07 October, 2004 (07.10.04), Full text; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
Int.Cl.7 B05D1/04, B05C19/00, B05D1/28 // H01M4/88, 8/02, 8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））
Int.Cl.7 B05D1/04, B05C19/00, B05D1/28 // H01M4/88, 8/02, 8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922—1996年
日本国公開実用新案公報	1971—2005年
日本国実用新案登録公報	1996—2005年
日本国登録実用新案公報	1994—2005年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

W P I L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2002-367616 A (松下電器産業株式会社) 2002.12.20, 全文、第1-10図 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2003-163011 A (トヨタ自動車株式会社) 2003.06.06, 全文、第1-24図 & US 2003-54225 A1	1-8
A	JP 11-126602 A (株式会社日平トヤマ) 1999.05.11, 全文、第1-14図 (ファミリーなし)	1-8

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 09.05.2005	国際調査報告の発送日 24.5.2005
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 山崎 利直 電話番号 03-3581-1101 内線 3474 4S 2932

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
A	JP 56-17664 A (大建工業株式会社) 1981. 02. 19, 全文、図面 (ファミリーなし)	1-8
E, A	JP 2004-281221 A (トヨタ自動車株式会社) 2004. 10. 07, 全文、第1-3図 (ファミリーなし)	1-8